

PCT/KR 2004/000153

RO/KR 29.01.2004 (#2)

Rec'd PCI/PTO 21 APR 2005

REC'D 16 FEB 2004

WIPO

PCT

대한민국 특허청

KOREAN INTELLECTUAL  
PROPERTY OFFICE

별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto  
is a true copy from the records of the Korean Intellectual  
Property Office.

출원번호 : 10-2003-0005976  
Application Number

출원년월일 : 2003년 01월 29일  
Date of Application JAN 29, 2003

출원인 : 한국화학연구원  
Applicant(s) KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY

**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



2004

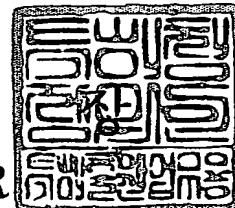
년 01

월 29

일

특 허 청

COMMISSIONER



## 【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2003.01.29
【발명의 명칭】	장파장 자외선 여기용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조방법
【발명의 영문명칭】	Composition and Preparation method of yellow silicates phosphor for long-wavelength UV excitation
【출원인】	
【명칭】	한국화학연구원
【출원인코드】	3-1998-007765-1
【대리인】	
【성명】	허상훈
【대리인코드】	9-1998-000602-6
【포괄위임등록번호】	1999-004160-2
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김창해
【성명의 영문표기】	KIM, Chang Hae
【주민등록번호】	601226-1326919
【우편번호】	305-755
【주소】	대전광역시 유성구 어은동 한빛아파트 138동 1402호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	박정규
【성명의 영문표기】	PARK, Joung Kyu
【주민등록번호】	680105-1009613
【우편번호】	305-340
【주소】	대전광역시 유성구 도룡동 431번지 공동관리아파트 7동 305호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	임미애
【성명의 영문표기】	LIM, Mi Ae
【주민등록번호】	780319-2067011

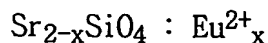
**【우편번호】** 361-150  
**【주소】** 충청북도 청주시 흥덕구 수곡동 세원2차아파트 101동 602호  
**【국적】** KR  
**【발명자】**  
**【성명의 국문표기】** 박희동  
**【성명의 영문표기】** PARK, Hee Dong  
**【주민등록번호】** 510520-1100111  
**【우편번호】** 449-900  
**【주소】** 경기도 용인시 기흥읍 영덕리 세종그랑시아 104동 301호  
**【국적】** KR  
**【심사청구】** 청구  
**【취지】** 특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인  
허상훈 (인)  
**【수수료】**  
**【기본출원료】** 12 면 29,000 원  
**【가산출원료】** 0 면 0 원  
**【우선권주장료】** 0 건 0 원  
**【심사청구료】** 3 항 205,000 원  
**【합계】** 234,000 원  
**【감면사유】** 정부출연연구기관  
**【감면후 수수료】** 117,000 원  
**【첨부서류】** 1. 요약서·명세서(도면)\_1통

## 【요약서】

## 【요약】

본 발명은 장파장 자외선 여기용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 스트론튬실리케이트 모체에 활성화제 성분으로 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )를 첨가하여 혼합하고 특정한 조건으로 건조하는 공정 및 열처리 공정을 수행함으로써, 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정 디스플레이에 적용되었을 때 매우 높은 발광효율을 가지는 다음 화학식 1로 표시되는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조방법에 관한 것이다.

## 【화학식 1】



상기 화학식 1에서  $x$ 는  $0.001 \leq x \leq 1$  이다.

## 【대표도】

도 3

## 【색인어】

스트론튬실리케이트계, 유로퓸옥사이드, 형광체

**【명세서】****【발명의 명칭】**

장파장 자외선 여기용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조방법{Composition and Preparation method of yellow silicates phosphor for long-wavelength UV excitation}

**【도면의 간단한 설명】**

도 1은 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 405 nm의 자외선으로 여기시켜 얻은 발광 스펙트럼을 나타낸 것이다.

도 2는 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 활용한 발광다이오드의 개략도를 나타낸 것이다.

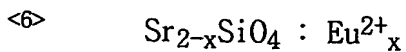
도 3은  $\text{Sr}_{2-x}\text{SiO}_4 : \text{Eu}^{2+}_x$ 의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 이용한 백색 발광 다이오드 칩(GaN)과 YAG : Ce의 황색 형광체를 이용한 백색 발광 다이오드 칩(InGaN)의 상대 휘도 발광 스펙트럼을 나타낸 것이다.

**【발명의 상세한 설명】****【발명의 목적】****【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】**

<4> 본 발명은 장파장 자외선 여기용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 스트론튬실리케이트 모체에 활성화제 성분으로 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )를 첨가하여 혼합하고 특정한 조건으로 건조하는 공정 및 열처리 공정을 수행함으로써,

장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정 디스플레이에 적용되었을 때 매우 높은 발광 효율을 가지는 다음 화학식 1로 표시되는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법에 관한 것이다.

<5> [화학식 1]



<7> 상기 화학식 1에서  $x$ 는  $0.001 \leq x \leq 1$  이다.

<8> 현재 청색, 녹색 및 적색 등의 발광 다이오드들을 제조하기 위해서는 InGaN, GaN, GaAs, ZnO 등의 서로 다른 기판을 제조하여야 된다. 이러한 제조 공정은 서로 다른 반도체 박막을 활용해야 하기 때문에 발광 다이오드 제조 공정에 투자비가 많이 들고 제조 단가가 비싸지는 문제점을 가지고 있다.

<9> 따라서 같은 반도체 박막을 이용하여 청색, 적색 및 녹색발광을 하는 발광 다이오드 제조가 가능하다면 공정이 간단해 지기 때문에 제조 비용 및 투자비용을 획기적으로 줄일 수 있다. 또한 조명, 노트북, 핸드폰 등의 액정 디스플레이용 후면광원으로 각광받는 백색 발광 다이오드는 최근 상기 InGaN계의 발광 다이오드(LED)에서 나오는 370 nm 근처의 자외선을 여기 원으로 사용할 수 있는 형광체를 다이오드에 발라서 백색광을 내려는 시도[Phosphor Research Society Meeting Digest, 264, 5 (1996); J. Crystal Growth 195, 242 (1998); 및 J. Crystal Growth 189/190, 778 (1998)]가 있으며, 청색 발광 다이오드에 황색(560 nm)을 내는 YAG:Ce 형광체를 결합하여 제조되고 있다.

<10> 그러나 상기 청색 발광 다이오드를 활용한 백색 발광 다이오드는 여기 에너지원으로 450 ~ 470 nm 의 파장을 가지고 있기 때문에 적합한 형광물질에 많은 문제점을 가지고 있다.

즉, 450 ~ 470 nm 대의 파장을 가지는 청색 발광 다이오드를 이용해서는 YAG:Ce를 이용한 백색 발광 다이오드 밖에 구현이 어렵다. 이러한 상기의 문제점들을 해결하기 위해 YAG:Ce 이외에 황색을 구현하는 새로운 형광물질의 개발이 시급하다.

### 【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

- <11> 본 발명자들은 상기와 같은 기존 형광물질이 가진 한계성을 해결하는 새로운 황색이 구현되는 형광물질을 개발하기 위하여 연구 노력한 결과, 스트론튬실리케이트 모체에 유로퓸옥사이드로 도핑한 스트론튬실리케이트 황색 형광체를 개발함으로써 본 발명을 완성하게 되었다.
- <12> 따라서 본 발명은 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정 디스플레이에 적용되었을 때 매우 높은 발광효율을 가지는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조방법을 제공하는데 그 목적이 있다.

### 【발명의 구성 및 작용】

- <13> 본 발명은 다음 화학식 1로 표시되는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체에 그 특징이 있다.
- <14> [화학식 1]
- <15>  $\text{Sr}_{2-x}\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}_x$
- <16> 상기 화학식 1에서  $x$ 는  $0.001 \leq x \leq 1$  이다.
- <17> 또한 본 발명은 스트론튬카보네이트, 실리카 및 유로퓸옥사이드를 칭량하여 용매하에서 혼합하는 1 단계 공정: 상기 1 단계 공정의 혼합물을 오븐에서 100 ~ 150 °C, 1 ~ 24시간동

안 건조하는 2 단계 공정: 및 상기 2 단계 공정의 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고, 수소 혼합가스의 환원 분위기하에서  $800 \sim 1500^{\circ}\text{C}$ , 1 ~ 48시간동안 전기로에서 열처리하는 3 단계 공정으로 구성된 상기 화학식 1의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의 제조방법을 또 다른 특징으로 한다.

<18> 이와 같은 본 발명을 상세히 설명하면 다음과 같다.

<19> 본 발명은 넓은 파장의 스펙트럼을 보이고, 모체를 도핑하는 유로피움의 농도에 따라 주 피크도 이동이 용이하여 색순도 개선을 가능하게 하므로 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정 디스플레이의 고효율 황색 형광물질로 적용 가능한 스트론튬실리케이트계 형광체와 이의 제조방법에 관한 것이다.

<20> 모체를 도핑하는데 사용되는 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )는 스트론튬실리케이트 모체를 구성하는 스트론튬 사용량에 대하여 0.001 ~ 1 몰비를 사용하며, 바람직하기로는 0.01 ~ 0.3 몰비를 첨가하여 사용하는 것이 좋다. 상기 유로퓸옥사이드 사용량이 0.001 몰비 미만이면 활성제로서의 기능을 하기에 충분한 양이 되지 못하며, 1 몰비를 초과하면 농도 소광 현상에 따른 휘도 저하의 문제가 발생한다.

<21> 한편 본 발명은 상기한 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 공정을 포함하는 바, 제조공정은 다음의 3 단계로 이루어진다.

<22> 스트론튬카보네이트, 실리카, 유로퓸옥사이드를 칭량하여 용매하에서 혼합하는 1 단계 공정:

<23> 상기 1 단계 공정의 혼합물을 오븐에서  $100 \sim 150^{\circ}\text{C}$ , 1 ~ 24시간동안 건조하는 2 단계 공정: 및



- <24> 상기 2 단계 공정의 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고, 수소 혼합가스의 환원 분위기하에서 800 ~ 1500 °C, 1 ~ 48시간동안 전기로에서 열처리하는 3 단계 공정으로 구성된다. 상기 3 단계 공정에서 열처리 온도가 800 °C 미만이면 스트론튬실리케이트의 결정이 완전하게 생성되지 못하게 되어 발광 효율이 감소하게 되고 1500 °C를 초과하면 과반응에 의해 휘도가 저하되는 문제가 발생한다. 또한 상기 수소 혼합가스는 환원 분위기를 위하여 수소가 2 ~ 25 중량% 혼합된 질소 가스를 사용한다.
- <25> 이와 같은 3 단계 공정으로 제조된 본 발명은 스트론튬 실리케이트를 기본으로 하고 유로피움 성분이 활성제로 도핑된 황색 형광체를 형성하여, 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정 디스플레이에 적용되었을 때 매우 높은 발광효율을 가질 것이다.
- <26> 이하, 본 발명을 다음의 실시예에 의하여 더욱 상세하게 설명하겠는 바, 본 발명이 실시예에 의하여 한정되는 것은 아니다.
- <27> 실시예 :  $\text{Sr}_{2-x}\text{SiO}_4: \text{Eu}^{2+}_x$  형광체의 조성변화 실험
- <28> 스트론튬카보네이트( $\text{SrCO}_3$ ), 실리카( $\text{SiO}_2$ ), 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )을 원하는 조성으로 칭량하여 아세톤 용매하에서 볼 밀링(ball milling) 또는 마노 유발의 혼합기를 이용하여 혼합하였다. 그리고 상기 혼합물을 오븐에서 120 °C 온도로, 24시간동안 건조하였다. 상기 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고, 수소 혼합가스의 환원 분위기하에서 1000 °C, 48시간동안 전기로에서 열처리하여 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 제조하였다.
- <29> 첨부되는 도 1은 제조된 각각의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체가 황색을 내는 405 nm의 파장으로 여기 시킨 발광 스펙트럼이다. 도 1에서 보여지는 바와 같이, 본 발명으로

제조된 황색 형광체는 450 ~ 650 nm의 넓은 파장의 스펙트럼을 보이며 각 유로퓸의 농도에 따라 주피크의 범위도 520 ~ 550 nm까지 변하는 것을 알 수 있었다.

<30> 실험예: 백색 발광 다이오드 칩의 제조

<31> 상기 실시예에서 제조된 스트론튬실리케이트계 황색 형광체( $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ )와 405 nm의 발광을 하는 GaN의 발광 다이오드를 사용하여 도 2에 나타낸 것과 같이 장파장 자외선 백색 발광 다이오드칩을 제조하였다.

<32> 본 발명의 형광체를 사용하여 제조된 다이오드 칩과 기존의 다이오드 칩을 서로 비교실험하기 위하여, 상용 YAG 형광체와 460 nm의 발광을 하는 InGaN 칩을 사용하여 YAG : Ce 황색 형광물질을 활용한 장파장 자외선 발광 다이오드 칩(InGaN)을 제조하였다.

<33> 도 3은 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체( $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ )를 이용하여 제조한 백색 발광 다이오드 칩과 기존의 InGaN 칩을 이용한 다이오드 칩을 비교한 것이다. 본 발명의 형광체를 사용하여 제조된 발광 다이오드 칩은 450 ~ 650 nm의 넓은 파장의 스펙트럼을 보였으며, 주피크도 넓게 변하므로 색순도의 개선이 가능하여 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정디스플레이에 고효율 황색 적용물질로서 적용되어질 수 있다.

【발명의 효과】

<34> 본 발명은 스트론튬실리케이트 모체에 유로퓸옥사이드로 도핑하여 제조된 스트론튬실리케이트계 황색 형광체에 관한 것으로, 본 발명의 형광체는 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능

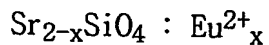
동 발광형 액정 디스플레이에 적용되었을 때 매우 높은 발광효율을 가져 조명, 노트북, 핸드폰 등의 액정 디스플레이용 후면광원으로 사용시 특히 효과적이다.

## 【특허청구범위】

## 【청구항 1】

다음 화학식 1로 표시되는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체.

[ 화학식 1 ]



상기 화학식 1에서  $x$ 는  $0.001 \leq x \leq 1$  이다.

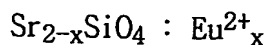
## 【청구항 2】

스트론튬카보네이트, 실리카, 유로퓸옥사이드를 칭량하여 용매하에서 혼합하는 1 단계 공정:

상기 1 단계 공정의 혼합물을 오븐에서  $100 \sim 150^\circ\text{C}$ , 1 ~ 24시간동안 건조하는 2 단계 공정: 및

상기 2 단계 공정의 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고, 수소 혼합가스의 환원 분위기하에서  $800 \sim 1500^\circ\text{C}$ , 1 ~ 48시간동안 전기로에서 열처리하는 3 단계 공정으로 구성된 것을 특징으로 하는 다음 화학식 1의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의 제조방법.

[ 화학식 1 ]



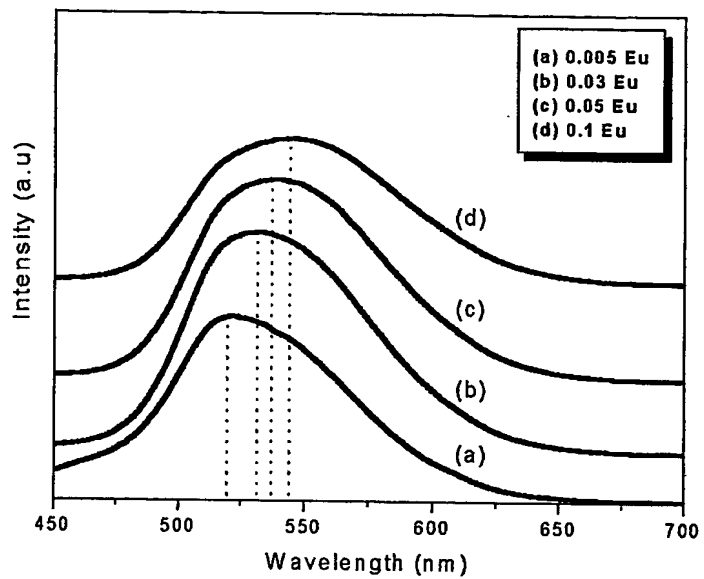
상기 화학식 1에서  $x$ 는  $0.001 \leq x \leq 1$  이다.

## 【청구항 3】

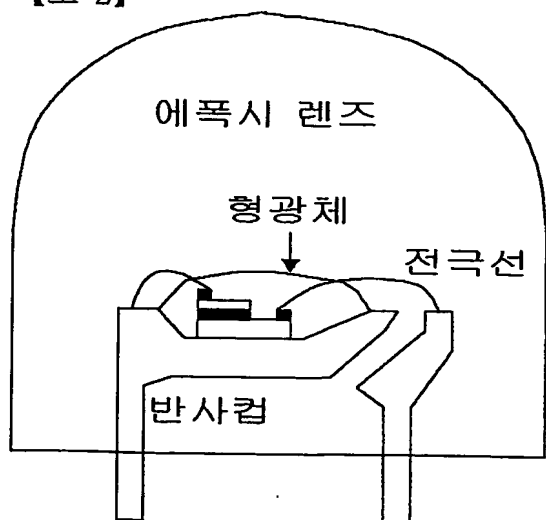
제 2 항에 있어서, 상기 수소 혼합가스는 수소함량이 2 ~ 25 중량%인 질소를 사용하는 것을 특징으로 하는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의 제조방법.

【도면】

【도 1】



【도 2】



【도 3】

